

กฤตนันท์ ดีคำวงศ์ : การเตรียมวัสดุรูพรุน MCM-41 และถ่านกัมมันต์เพื่อเป็นตัวรองรับ  
ตัวเร่งปฏิกิริยานิกเกิลสำหรับการสังเคราะห์ *n*-บิวทานอล (PREPARATION OF POROUS  
MATERIAL MCM-41 AND ACTIVATED CARBON AS NICKEL CATALYST  
SUPPORTS FOR *n*-BUTANOL SYNTHESIS) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์  
ดร.จตุพร วิทยาคุณ, 114 หน้า

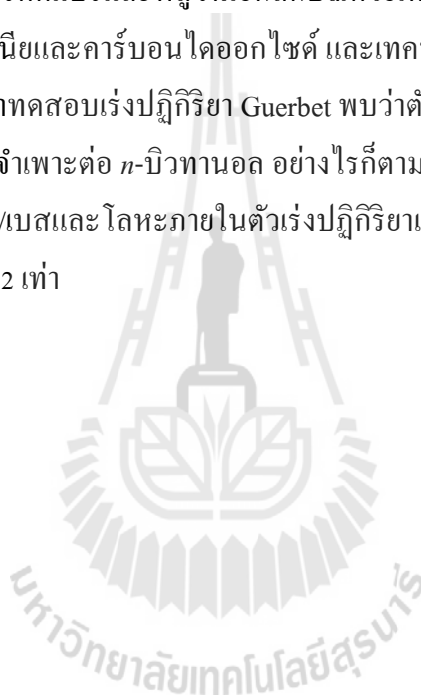
วิทยานิพนธ์ฉบับนี้ประกอบไปด้วยงานวิจัยหลัก 4 หัวข้อ ได้แก่ 1) การสังเคราะห์แบบ  
ไฮโดรเทอร์มัลและพิกเจอร์เอ็กต์ของ MCM-41 ที่ประกอบไปด้วยซิลิกอน ([Si]MCM-41)  
ภายใต้คลื่นไมโครเวฟ 2) การนำ CTA<sup>+</sup> ออกจาก [Si]MCM-41 3) การเตรียมถ่านกัมมันต์เพื่อใช้  
เป็นตัวรองรับตัวเร่งปฏิกิริยา 4) การสังเคราะห์และพิกเจอร์เอ็กต์ของตัวเร่งปฏิกิริยาบนตัว  
รองรับเพื่อนำไปใช้สังเคราะห์ *n*-บิวทานอล จากเอทานอล

การศึกษาส่วนแรกเกี่ยวกับการสังเคราะห์ [Si]MCM-41 ภายใต้คลื่นไมโครเวฟ โดยมี  
อัตราส่วนของ CTAB:SiO<sub>2</sub> กับอัตราส่วนของ NaOH:SiO<sub>2</sub> และเวลาในการตกผลึกที่แตกต่างกัน  
เพื่อเพิ่มคุณภาพของ [Si]MCM-41 จากการทดลองพบว่าปัจจัยที่กล่าวมาข้างต้นนั้นส่งผลให้การ  
สังเคราะห์ด้วยอัตราส่วน 3.34SiO<sub>2</sub>: 4.46NaOH: 1CTAB ภายใต้คลื่นไมโครเวฟเป็นระยะเวลา 90  
นาที มีโครงสร้างแบบเฮกซะกอนัลเรียงตัวอย่างเป็นระเบียบ พื้นที่ผิวสูงและอนุภาคขนาดเล็ก จาก  
การวิเคราะห์ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD) การดูดซับและคายซับของแก๊ส  
ไนโตรเจน เทคนิคทางความร้อน (TGA) และการกระเจิงแสง (DLS) ตามลำดับ นอกจากนี้เมื่อ  
เปรียบเทียบขนาดอนุภาคของ [Si]MCM-41 ที่สังเคราะห์ภายใต้คลื่นไมโครเวฟจะให้ขนาดเล็กกว่า  
[Si]MCM-41 ที่สังเคราะห์ภายใต้ความร้อนจากเตาอบทั่วไป

การศึกษาส่วนที่สองเพื่อที่จะลดการใช้พลังงานในการกำจัด CTA<sup>+</sup> จาก [Si]MCM-41 ที่  
สังเคราะห์ได้ โดยศึกษาบทบาทของตัวกลางในการแลกเปลี่ยนไอออน ชนิดของสารละลายเกลือ  
อุณหภูมิและเวลาในการแลกเปลี่ยนภายใต้การสั่นของคลื่นอัลตราโซนิค ซึ่งพบว่าการแลกเปลี่ยน  
ไอออนด้วยเกลือของแอมโมเนียมที่อุณหภูมิ 30 °C ในเวลา 15 นาทีให้ประสิทธิภาพในการกำจัด  
CTA<sup>+</sup> สูงมากกว่า 70 % และไม่ทำลายโครงสร้าง [Si]MCM-41 ด้วยการวิเคราะห์ด้วย XRD และ  
TGA นอกจากนี้การนำ CTA<sup>+</sup> กลับคืนมาจากสารละลายที่ได้จากการสกัดโดยแลกเปลี่ยนไอออน  
มาแล้วข้างต้นและจากสารละลายในขั้นตอนการสังเคราะห์ [Si]MCM-41 แสดงให้เห็นว่า CTA<sup>+</sup> ที่  
นำกลับมาได้มีองค์ประกอบอื่นที่ไม่ต้องการ

การศึกษาส่วนที่สามเกี่ยวกับการเพิ่มตำแหน่งความเป็นกรดในถ่านกัมมันต์ของต้นตะขบ (*M. calabura*) ที่คาดการณ์ว่าเป็นตำแหน่งที่ใช้ดูดซับตัวเร่งปฏิกิริยานิกเกิล ทั้งนี้หมู่ฟังก์ชันกรด คุณลักษณะทางพื้นผิวและเสถียรภาพทางความร้อนของตัวอย่างที่เตรียมได้สามารถพิสูจน์ได้ด้วยเทคนิคอินฟราเรดสเปกโทรสโกปี (FTIR) การดูดซับและคายซับของแก๊สไนโตรเจน และ TGA ซึ่งพบว่าตำแหน่งความเป็นกรดเพิ่มขึ้นได้เมื่อผ่านกระบวนการกระตุ้นทางกายภาพภายใต้บรรยากาศแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และภายใต้บรรยากาศแก๊สออกซิเจนตามลำดับ

การศึกษาส่วนสุดท้ายเกี่ยวกับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยานิกเกิลบนตัวรองรับ [Si]MCM-41 และถ่านกัมมันต์ที่ผ่านการดัดแปรและพิสูจน์เอกลักษณ์ด้วยเทคนิค XRD เทคนิคการคายซับตามอุณหภูมิของแก๊สแอมโมเนียและคาร์บอนไดออกไซด์ และเทคนิคการคายซับตามอุณหภูมิจัดชั้นแบบผันกลับ จากนั้นนำมาทดสอบเร่งปฏิกิริยา Guerbet พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่สังเคราะห์ขึ้นให้ผลการเร่งปฏิกิริยาต่ำและไม่จำเพาะต่อ *n*-บิวทานอล อย่างไรก็ตาม จากผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าการมีอยู่ของตำแหน่งกรด/เบสและโลหะภายในตัวเร่งปฏิกิริยาเดี่ยว สามารถเพิ่มประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยานี้ได้ประมาณ 2 เท่า



KRITTANUN DEEKAMWONG : PREPARATION OF POROUS  
MATERIAL MCM-41 AND ACTIVATED CARBON AS NICKEL  
CATALYST SUPPORTS FOR *n*-BUTANOL SYNTHESIS. THESIS  
ADVISOR : ASSOC. PROF. JATUPORN WITTAYAKUN, Ph.D. 114 PP.

MCM-41/MICROWAVE/TEMPLATE REMOVAL/EXTRACTION/ION  
EXCHANGE/ULTRASOUND/ACTIVATED CARBON/NICKEL/*n*-BUTANOL

There are four main topics in this thesis consisting of 1) hydrothermal synthesis of siliceous MCM-41 ([Si]MCM-41) under microwave irradiation and characterization; 2) removal and recovery of templating agent  $\text{CTA}^+$  from the as-synthesized [Si]MCM-41; 3) preparation of activated carbon as a catalyst support 4) synthesis and characterization of nickel catalysts on activated carbon and [Si]MCM-41 for the synthesis of *n*-butanol from ethanol.

The first topic involve the synthesis of [Si]MCM-41 under microwave irradiation was studied. Effects of CTAB:SiO<sub>2</sub> mole ratio, NaOH:SiO<sub>2</sub> mole ratio and crystallization time were varied to improve the quality of the [Si]MCM-41. The synthesis by using 3.34SiO<sub>2</sub>: 4.46NaOH: 1CTAB gel ratio under microwave hydrothermal time of 90 min achieved the high ordering of hexagonal structure, high surface area and small particle size regarding to X-ray diffraction (XRD), N<sub>2</sub> adsorption-desorption, thermogravimetric analysis (TGA) and dynamics light scattering (DLS). Furthermore, [Si]MCM-41 synthesized under microwave irradiation has smaller particle sizes than those obtained from conventional heating.

The second topic dealt with a strategy to reduce energy consumption on  $\text{CTA}^+$  removal from the as-synthesized [Si]MCM-41. An inductive role of ion exchange media, type of salt solutions, time and temperature under sonication was revealed by TGA and XRD. The ion exchange condition by using ammonium salt under 30 °C for 15 min gave the percentage of  $\text{CTA}^+$  removal more than 70 % and did not destruct the [Si]MCM-41 structure. Furthermore,  $\text{CTA}^+$  recovery from the solution after  $\text{CTA}^+$  extraction (extracted  $\text{CTA}^+$ ) and from the solution after synthesis of [Si]MCM-41 (waste powder) was studied. The extracted  $\text{CTA}^+$  and waste powder contained  $\text{CTA}^+$  molecules and unwanted compounds which were oxidized CTAB and siliceous material according to Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) and XRD.

The third topic, activated carbon from charcoal of *M. calabura* wood was modified to increase acid sites which were expected as adsorption site for nickel catalyst. The acid functional groups, surface properties and thermal stability were determined by FTIR,  $\text{N}_2$  adsorption-desorption and TGA. Acid sites on the activated carbon were enhanced after treatments under  $\text{CO}_2$  and then air zero.

Finally, nickel nanoparticles on [Si]MCM-41 and modified activated carbon were prepared and characterized by XRD,  $\text{NH}_3$  temperature-programmed desorption,  $\text{CO}_2$  temperature-programmed desorption and inverse-temperature programmed reduction. All of catalyst screening on Guerbet reaction showed a low ethanol conversion and *n*-butanol selectivity. However, the presence of acid/base and metal in a catalyst increased the catalytic activity by twofold.

School of Chemistry

Student's Signature\_\_\_\_\_

Academic Year 2015

Advisor's Signature\_\_\_\_\_